

BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND



Prioritätsbescheinigung über die Einreichung einer Patentanmeldung

Aktenzeichen: 103 15 706.9

Anmeldetag: 7. April 2003

Anmelder/Inhaber: FEE Forschungsinstitut für Mineralische und
Metallische Werkstoffe Edelsteine/Edelmetalle GmbH,
Idar-Oberstein/DE

Bezeichnung: Verfahren und Vorrichtung zur Züchtung
von Korund-Einkristallen

Priorität: 24.8.2002 DE 102 38 876.8

IPC: C 30 B 15/00

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der
ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 29. Juli 2003
Deutsches Patent- und Markenamt
Der Präsident

Im Auftrag

Dr. Dieter Weber *Dipl.-Chem.*

Klaus Seiffert *Dipl.-Phys.*

Dr. Winfried Lieke *Dipl.-Phys.*

Dr. Roland Weber *Dipl.-Chem.*

Weber, Seiffert, Lieke · Patentanwälte · Postfach 6145 · 65051 Wiesbaden

Deutsches Patent- und Markenamt
Zweibrückenstr. 12

80331 München

Patentanwälte

European Patent Attorneys

Taunusstraße 5a
65183 Wiesbaden
Postfach 6145 · 65051 Wiesbaden
Telefon 06 11 / 99 174-0
Telefax 06 11 / 99 174-50
E-Mail: mail@WSL-Patent.de

Datum: 3. April 2003
K/ri - RI_006

Unsere Akte: #FEE 103-01-DE

FEE
Forschungsinstitut für Minerali-
sche und Metallische Werkstoffe
Edelsteine/Edelmetalle GmbH
Struthstraße 2

55743 Idar-Oberstein

Verfahren und Vorrichtung zur Züchtung von Korund-Einkristallen

Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zur Züchtung von Einkristallen, bei dem Kristallmate-
rial in einem Tiegel aufgeschmolzen wird, ein Kristallkeim bzw. Impfkristall in das geschmolzene
Kristallmaterial eingetaucht und langsam aus der Schmelze gezogen wird, so daß kontinuierlich an
5 dem Kristallkeim weiteres Material ankristallisiert und den Einkristall bildet. Des weiteren betrifft die
vorliegende Erfindung eine Vorrichtung für die Durchführung des Kristallzuchtverfahrens.

Die vorliegende Erfindung basiert auf Versuchen zur Züchtung von Korundeinkristallen und wird
daher beispielhaft anhand der Züchtung dieser Kristalle beschrieben. Es versteht sich jedoch, daß
10 die Erfindung nicht auf die Züchtung von Korundkristallen beschränkt ist.

Das Mineral Korund Al_2O_3 hat eine trigonal-sklenoedrische Symmetrie und bildet im allgemeinen
Kristalle von prismatischem, pyramidalem, flachtafeligem oder rhomboedrischem Habitus. Ein Bei-
spiel eines Korundkristalls ist der Saphir. Saphire sind in der Natur vorkommende Edelsteine aus

Postgiro: Frankfurt/M 6763-602
Bank: Dresdner Bank AG, Wiesbaden
Konto 27 680 700 (BLZ 510 800 60)

Aluminiumoxid Al_2O_3 mit Korundstruktur. Die Saphire weisen im allgemeinen einen Eisengehalt auf, der zwischen 0,005 und 0,8% Fe liegt und enthalten in geringen Mengen Titan in der Oxidationsstufe +4. In der Technik werden synthetisch hergestellte farblose Korundeinkristalle auch als Saphir bezeichnet.

5

In neuerer Zeit werden 0° -Saphir-Wafer als Trägersubstrate für das Aufwachsen von GaN, InGaN und ähnlichen Halbleiterschichten zur Herstellung von LEDs, insbesondere von blauen bzw. weißen LEDs, eingesetzt. 0° bedeutet hierbei, daß die kristallographische c-Achse senkrecht zu der Waferoberfläche orientiert ist. 0° -Saphir-Wafer sind für die Epitaxie besonders geeignet, da sie eine passende Gitterkonstante und geeignete Oberflächeneigenschaften besitzen, so daß epitaktisches Aufwachsen der gewünschten Halbleiterschichten einfach möglich ist.

10

15

Insbesondere bei der Herstellung von LEDs ist es von Vorteil, wenn das Kristallmaterial, das heißt insbesondere der zugrundeliegende Saphir-Wafer möglichst wenig Kristallbaufehler aufweist, da dadurch die Ausbeute an guten LEDs pro Wafer erhöht werden kann, was wiederum zu einer Kostenreduktion beiträgt.

20

Saphir besitzt jedoch anisotrope physikalische Eigenschaften. So verhält sich beispielsweise der lineare thermische Ausdehnungskoeffizient in den beiden kristallographischen Hauptrichtungen unterschiedlich. Erhitzt man einen Saphirkristall beispielsweise von 20°C auf 980°C , ändert sich die Gitterkonstante in der a-Richtung um ca. 0,8%, während sich die Gitterkonstante in der c-Richtung um ca. 0,9% ändert. Bei den bekannten Kristallzüchtungsverfahren kann dies zu Problemen führen, die die Qualität der synthetisch hergestellten Saphire herabsetzen.

25

Zur Herstellung von Saphirkristallen - hauptsächlich für die Uhrglasindustrie - wurde bislang hauptsächlich das Verneuil-Verfahren angewendet. Hierbei wird Aluminiumoxidpulver durch eine Knallgasflamme gerieselte und zu Tröpfchen aufgeschmolzen, die auf einem unterhalb angebrachten Saphirkeim auftreffen und dort anwachsen. Mit diesem Verfahren werden Saphirkristalle bis ca. 40 mm Durchmesser gezüchtet, die allerdings in der Regel Kleinwinkelkorn Grenzen und andere Kristallbaufehler aufweisen

30

Daher werden zur Zeit Saphirkristalle für die GaN-Epitaxie im wesentlichen nach den folgenden vier verschiedenen Verfahren gezüchtet:

35

1.

Czochralski-Verfahren: Bei diesem Verfahren wird ein Impfkristall in eine in einem Tiegel vorliegende Schmelze eingetaucht und dann frei tragend unter genauer Kontrolle der Ziehgeschwindigkeit wieder herausgezogen. Da die Schmelze eine Temperatur oberhalb und der Impfkristall eine Tem-

peratur unterhalb der Schmelztemperatur des Kristalls hat, kristallisiert bei geeignet gewählter Ziehgeschwindigkeit Kristallmaterial an dem Impfkristall an. Bei diesem Verfahren bildet sich jedoch über dem bereits aus der Schmelze gezogenen Kristall ein relativ hoher thermischer Gradient aus. Dadurch können - bedingt durch den anisotropen linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten - im

5 Kristall Gitterbaufehler entstehen.

Um diesen Effekt im Kristall bei diesem Züchtungsverfahren möglichst gering zu halten, wird der Impfkristall so orientiert, daß die kristallographische c-Achse mit der Ziehrichtung einen Winkel von 60° oder 90° einschließt. Zwar können mit diesem Verfahren relativ hochwertige Kristalle erzeugt

10 werden, die Kristallausbeute für entlang der c-Achse orientierte Wafer ist jedoch sehr gering, da aus dem auf diese Art und Weise hergestellten Kristallen zur Waferherstellung seitlich Ingots, d.h. Kristallblöcke, herausgebohrt werden müssen. Dieses Verfahren ist somit sehr aufwendig und teuer.

2.

15 Nacken-Kyropoulos-Verfahren: Bei diesem Verfahren werden 90°-Saphirkristalle, das heißt Kristalle, bei denen die Ziehrichtung senkrecht zur c-Achse des Kristalls verläuft, mit relativ großen Durchmesser gezüchtet. Um 0°-Saphir-Wafer zu erhalten, müssen dann entsprechende Zylinder senkrecht zur Ziehrichtung in Richtung der kristallographischen c-Achse aus den hergestellten Kristallen herausgebohrt werden und dann anschließend zersägt werden, um Wafer zu erhalten. Dieses Züch-

20 tungsverfahren ist äußerst personalintensiv und hat nur eine geringe Materialausbeute.

3.

Bagdasarov-Verfahren: Die mit Hilfe dieses Verfahrens gezüchteten Saphir-Einkristalle haben eine barrenförmige Ausdehnung, wobei die 0°-Richtung, das heißt die kristallographische c-Achse, meist

25 in der Richtung der kleinsten Dimension liegt, die selbst bei optimalem Verfahrensablauf in der Regel kleiner als 30 mm ist. Zwar kann man auch hier entsprechende 0°-Wafer-Ingots ausbohren, diese sind jedoch so kurz, daß eine effiziente Weiterverarbeitung zu Wafern kaum wirtschaftlich ist.

4.

30 Heat-Exchanger-Verfahren: Bei dem Heat-Exchanger-Verfahren, das auch als HEM bezeichnet wird, wird das in einem Tiegel aufgeschmolzene Rohmaterial vom Tiegelboden her durch eine geschickte Kühlung erstarrt. Durch eine Platzierung von Impfkristallen am Tiegelboden kann die Kristallorientierung vorgegeben werden. Mit diesem Züchtungsverfahren können zwar recht große und qualitativ hochwertige Kristalle erzeugt werden, der damit verbundene Zeitaufwand ist jedoch sehr

35 hoch.

Es ist daher Aufgabe der vorliegenden Erfindung, ein Verfahren und eine Vorrichtung zur Verfügung zu stellen, mit dem bzw. mit der es möglich ist, in Richtung der c-Achse (0°-Richtung) orientierte

Saphirkristalle kostengünstig mit hoher Kristallqualität herzustellen. Aus solchen Kristallen können nämlich durch Rundschleifen und Aufsägen 0° -Wafer ohne großen Materialverlust hergestellt werden.

- 5 Die Aufgabe wird hinsichtlich des Verfahren dadurch gelöst, daß bei dem eingangs beschriebenen Verfahren während des langsamen Herausziehens des Kristallkeims zwischen geschmolzenem Kristallmaterial und aus der Schmelze gezogenem Einkristall ein niedriger Temperaturgradient eingestellt wird. Mit anderen Worten wird der sich während des Ziehens bildende Kristall auf einer Temperatur nahe der Schmelztemperatur gehalten, indem das aus der Schmelze herausgezogenen und
- 10 erstarrte Kristallmaterial gegenüber Wärmestrahlungsverlusten zumindest teilweise abgeschirmt wird und/oder Wärmeverluste durch eine Zusatzheizung mindestens teilweise ausgeglichen werden.

Bei den bekannten Vorrichtungen zur Durchführung des Czochralski-Verfahrens wird das Kristallmaterial im allgemeinen in einem als Suszeptor dienenden Tiegel mittels einer als Induktor dienenden

15 Induktionsspule zum Schmelzen gebracht. Dabei wird durch den Induktor der Tiegelsuszeptor erhitzt, wodurch wiederum das sich im Tiegel befindliche Material erhitzt wird. Da sonst keine Heizelemente vorgesehen sind, bildet sich zwangsläufig ein sehr hoher Temperaturgradient entlang des gezüchteten Kristalls aus.

- 20 Das erfindungsgemäße Verringern des Temperaturgradienten kann beispielsweise durch getrenntes Beheizen des Ofenraums, in dem sich der Tiegel befindet, mittels der Zusatzheizung erfolgen.

Eine Vielzahl von Versuchen hat gezeigt, daß die schlechte Qualität, insbesondere die Vielzahl der Kristallbaufehlern, bei den mit dem herkömmlichen Czochralski-Verfahren hergestellten Kristallen im

25 wesentlichen auf dem relativ hohen thermischen Gradienten, insbesondere in Ziehrichtung, das heißt in Axialrichtung des in c-Richtung orientierten Kristalls, verantwortlich ist. Erfindungsgemäß wird daher dafür Sorge getragen, daß der Temperaturgradient über dem aus dem Tiegel gezogenen Kristall möglichst gering ist.

- 30 Es sei bemerkt, daß zwar ein kleiner Temperaturgradient von Vorteil ist, aber die Schmelze mit Vorteil eine Temperatur oberhalb des Schmelzpunktes des Kristallmaterials hat, während der gezogene Kristall immer eine Temperatur unterhalb des Schmelzpunktes haben muß.

In einer weiteren besonders bevorzugten Ausführungsform ist vorgesehen, daß die Abschirmung

35 und/oder die Zusatzheizung derart angeordnet wird, daß in Ziehrichtung des Kristalls ein im wesentlichen konstanter Temperaturgradient eingestellt wird. Dadurch kann ein besonders homogener und vor allem möglichst defektarmer Kristall hergestellt werden.

Mit Vorteil wird der Temperaturgradient in dem verfestigten Kristallmaterial während des Ziehens unter einem Maximalwert von 4 K/cm, vorzugsweise unter einem Maximalwert von 3 K/cm gehalten.

Weiterhin ist in einer bevorzugten Ausführungsform vorgesehen, daß nach dem Ziehen des Kristalls der maximale Temperaturgradient innerhalb des Kristalls auf einen Wert unter 2 K eingestellt wird und der Kristall insgesamt gleichmäßig abgekühlt wird. Dadurch werden Kristallfehler weitgehend vermieden.

In einer zweckmäßigen Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens wird der geringe Temperaturgradient dadurch erreicht, daß der Tiegel zumindest während des Schrittes des langsamen Herausziehens in einem vorzugsweise vertikal angeordneten Rohr aus elektrisch leitfähigem Material, das als Suszeptor dient, angeordnet ist und das Rohr mit einem Induktor induktiv beheizt wird.

Prinzipiell kann das Rohr jeden beliebigen Querschnitt aufweisen, wobei jedoch bevorzugt ein runder Querschnitt verwendet wird, um eine möglichst homogene Temperaturverteilung innerhalb des Rohres zu erreichen. Durch die rohrförmige Anordnung wird insbesondere erreicht, daß in axialer Richtung, das heißt in Ziehrichtung, der Temperaturgradient im Vergleich zu dem bekannten Czochralski-Verfahren deutlich reduziert werden kann.

In einer weiteren besonders zweckmäßigen Ausführungsform erfolgt zumindest das langsame Herausziehen des Kristallkeims unter Vakuum, vorzugsweise unter einem Druck zwischen 10^{-2} bis 10^{-8} hPa.

Alternativ ist in einer anderen zweckmäßigen Ausführungsform vorgesehen, daß zumindest das langsame Herausziehen des Kristallkeims in einer Atmosphäre erfolgt, die aus Argon oder Stickstoff oder einem Gemisch aus Argon und Sauerstoff, wobei der Sauerstoffanteil vorzugsweise zwischen 0 und 2 Vol.-% liegt, oder einem Gemisch aus Stickstoff und Sauerstoff, wobei der Sauerstoffanteil vorzugsweise zwischen 0 und 2 Vol.-% liegt, oder einem Gemisch aus Argon und Wasserstoff, wobei der Anteil des Wasserstoffs vorzugsweise zwischen 0 und 10 Vol.-% liegt, besteht.

Durch die entsprechende Auswahl der Züchtungsatmosphäre kann die Qualität des zu züchtenden Kristalls erhöht werden. Darüber hinaus kann aufgrund der unterschiedlichen Wärmekapazitäten und -leitfähigkeiten der verwendeten Züchtungsatmosphären der Temperaturgradient entsprechend beeinflusst werden.

Mit Vorteil wird die Temperatur in der Umgebung des Tiegels eingestellt. Dies kann zweckmäßig durch geeignete Wahl der Induktordimension und/oder der Suszeptorgeometrie erfolgen. Durch diese Maßnahme wird zwangsläufig auch der Temperaturgradient eingestellt.

5 In einer besonders bevorzugten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens wird das Suszeptormaterial, das heißt das Material, aus dem das Rohr gefertigt ist, in Abhängigkeit vom Material des Tiegels und der verwendeten Züchtungsatmosphäre ausgewählt. Je nach zu züchtendem Kristall kann - aufgrund der unterschiedlichen Schmelztemperaturen - ein anderes Tiegelmateri-
10 al besonders geeignet sein. Durch die Auswahl des Tiegelmateri- als wird gleichzeitig die von dem Induktor einzukoppelnde Leistung bestimmt, um das Kristallmaterial zum Schmelzen zu bringen. Da das Suszeptorrohr im allgemeinen von dem selben Induktor beheizt wird, kann die durch das Suszeptorrohr eingebrachte Heizenergie durch Auswahl des Suszeptormaterials eingestellt werden.

15 Besonders zweckmäßig ist das Verfahren, wie bereits eingangs erwähnt wurde, bei der Züchtung von Korundkristallen, insbesondere von Saphirkristallen. Dabei dient als Kristallkeim bzw. Impfkristall ein Korundkristall (Al_2O_3) bzw. ein Saphirkristall.

20 Mit Vorteil wird der Kristallkeim in Richtung der kristallographischen c-Achse in das Kristallmaterial eingetaucht und langsam herausgezogen. Dadurch wird sichergestellt, daß der entstehende Einkristall für die Herstellung von 0° -Wafers besonders geeignet ist. Aufgrund des erfindungsgemäßen niedrigen Temperaturgradienten ist es mit Hilfe des erfindungsgemäßen Verfahrens erstmals möglich, entlang der c-Achse orientierte und weitgehend baufehlerfreie Saphir-Kristalle leicht herzustellen, die für die Epitaxie hervorragend geeignet sind.

25 Hinsichtlich der Vorrichtung wird die eingangs beschriebene Aufgabe gelöst durch eine Vorrichtung zum Züchten von Einkristallen mit einem Tiegel zur Aufnahme von geschmolzenem Kristallmaterial, einer Heizeinrichtung zur Aufheizung des Tiegels und/oder des Kristallmaterials und einer Vorrichtung zum Ziehen des Kristalls aus der Schmelze, beispielsweise mit Hilfe eines eingetauchten Kristallkeims, dadurch gekennzeichnet, daß eine den Kristall während des Ziehens umgebende Ab-
30 schirmung und/oder Heizeinrichtung vorgesehen ist, die ein starkes Abkühlen des erstarrten Kristallmaterials gegenüber der Schmelze bzw. einen großen Temperaturgradienten innerhalb des erstarrten Kristallmaterials verhindern.

35 Mit Vorteil besteht die Heizeinrichtung aus einem vorzugsweise vertikal angeordneten Rohr aus elektrisch leitfähigem Material (Suszeptor), in dessen Innerem der Tiegel angeordnet ist, und einem Induktor, der das Rohr induktiv beheizt. Die induktive Ausführung hat den Vorteil, daß keinerlei elektrische Anschlüsse in den Ofen geführt werden müssen. Es versteht sich, daß auch wenn die Ausbildung des Suszeptors als einstückiges Rohr besonders bevorzugt ist, selbstverständlich der Sus-

zeptor auch aus zwei oder mehr Rohrstücken, die aufeinander stehen, oder auf andere Weise zusammengesetzt sein kann.

5 Ein weiterer Vorteil gegenüber einem widerstandsbeheizten Ofen ist der deutlich geringere Wartungsaufwand. Bei widerstandsbeheizten Öfen im 2000°C-Bereich müssen die aufwendigen Heizelemente nach wenigen Züchtungen ausgebaut und erneuert werden. Die relativ preiswerten Suszeptorrohre können einfach ausgetauscht werden.

10 Durch das direkte Einkoppeln der Induktionsleitung in den Tiegel beim herkömmlichen Czochralski-Ziehverfahren werden auch Spannungen im Tiegel erzeugt, die die Standzeit des Tiegels erheblich beeinflussen. Das Beheizen des Tiegels über das umgebende Rohr ist für den Tiegel erheblich schonender und erhöht die Standzeiten.

15 Zudem ist es leicht möglich, bereits bestehende Kristallzuchtanlagen mit einem Suszeptorrohr nachzurüsten. Als Induktor wird dann der ohnehin vorhandene Induktor oder ein verlängerter Induktor zur Beheizung des Tiegels verwendet.

20 Es hat sich gezeigt, daß in einer bevorzugten Ausführungsform das Rohr bzw. der Suszeptor aus Graphit, Wolfram, Molybdän, Iridium, Rhenium, Tantal, Osmium oder aus einer Legierung aus den genannten Elementen besteht. Als Legierungen kommen hier vorzugsweise Molybdän-Wolfram und Wolfram-Rhenium in Betracht.

25 In einer weiteren besonders bevorzugten Ausführungsform ist die Suszeptorlänge einstellbar. Diese Einstellbarkeit kann beispielsweise dadurch verwirklicht werden, daß mindestens zwei verschiedene Suszeptoren mit unterschiedlicher Länge zur Verfügung gestellt werden, die wahlweise in den Ofen eingebracht werden. Alternativ dazu kann der Suszeptor auch beweglich sein, so daß er zumindest teilweise aus dem von dem Induktor gebildeten Induktionsfeld herausgezogen werden kann.

30 In einer besonders zweckmäßigen Ausführungsform dient die Vorrichtung zum Ziehen des Kristalls als Heizeinrichtung. Dies kann entweder dadurch erfolgen, daß die Ziehvorrichtung als Suszeptor ausgebildet ist, oder durch Vorsehen eines Suszeptorelements an der Ziehvorrichtung. Insbesondere bei dieser Ausführungsform ist es besonders einfach möglich, das obere Ende des Kristalls, d.h. das der Schmelze abgewandte Ende, auf einer konstanten Temperatur unterhalb des Schmelzpunktes zu halten. Selbstverständlich kann dies aber auch mit den anderen beschriebenen Ausführungs-
35 formen mit Vorteil verwirklicht werden.

Es hat sich als besonders zweckmäßig erwiesen, wenn der Tiegel aus Iridium, Molybdän, Wolfram Rhenium, Tantal, Osmium oder aus Legierungen aus den genannten Elementen, wie z.B. Molybdän-Wolfram, Wolfram-Rhenium, besteht.

- 5 Um den Temperaturgradienten möglichst gut einstellen zu können, ist in einer zweckmäßigen Ausführungsform vorgesehen, daß das Suszeptorrohr eine variierende Wandstärke hat und vorzugsweise beweglich angeordnet ist. Es ist dann leicht möglich, durch axiale Verschiebung des Suszeptorrohrs den Temperaturgradienten einzustellen.

- 10 Weitere Vorteile, Merkmale und Anwendungsmöglichkeiten der vorliegenden Erfindung werden deutlich anhand der folgenden Beschreibung einer besonders bevorzugten Ausführungsform.

Bei einer besonders bevorzugten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens wird Aluminiumoxidpulver in einen Tiegel aus Iridium gefüllt. Der Tiegel wird nun in den Ofenraum gebracht und ein Suszeptorrohr aus Graphit, Wolfram, Rhenium oder einem anderen geeigneten Material über den Tiegel gestülpt, so dass das Suszeptorrohr den Tiegel und die Haltevorrichtung für den Impfkristall umgibt. Mit Hilfe eines Induktors wird nun das Suszeptorrohr und dadurch auch der Tiegel erwärmt, bis das Kristallrohmaterial geschmolzen ist.

- 15 20 Nun wird ein Saphir-Impfkristall, dessen c-Achse in Ziehrichtung orientiert ist, zunächst in die Schmelze eingetaucht und dann langsam wieder aus dieser herausgezogen, so daß an dem Impfkristall ein in Ziehrichtung orientierter Saphireinkristall ankristallisiert. Dadurch, dass das Suszeptorrohr ebenfalls von dem Induktor erwärmt wird, das heißt im wesentlichen wie eine Widerstandsheizung fungiert, beträgt der Temperaturgradient entlang des gezogenen Einkristalls von der Schmelze bis zum Impfkristall weniger als 2 K/cm. Durch das Vorsehen eines solch geringen Temperaturgradienten, insbesondere in Axialrichtung, das heißt in Ziehrichtung des Kristalls, kann die Qualität des gezüchteten Einkristalls deutlich verbessert werden. Der Temperaturgradient kann durch entsprechende Wahl der Größe und des Materials des Suszeptorrohrs eingestellt werden.

- 30 Auch wenn das erfindungsgemäße Verfahren und die erfindungsgemäße Vorrichtung lediglich anhand der Züchtung eines Saphir-Einkristalls beschrieben wurde, versteht es sich, daß die Erfindung auch für die Züchtung von anderen Kristallen verwendet werden kann, insbesondere für die Züchtung von Einkristallen mit stark anisotropen physikalischen Eigenschaften.

- 35 Dieses Verfahren ist insbesondere vorteilhaft, wenn während der Züchtung eine horizontale Wachstumsfront eingestellt werden soll.

PATENTANSPRÜCHE

1. Verfahren zur Züchtung von Einkristallen, bei dem Kristallmaterial in einem Tiegel aufgeschmolzen und ein Kristallkeim in das geschmolzene Kristallmaterial eingetaucht und langsam herausgezogen wird, dadurch gekennzeichnet, daß der sich während des Ziehens bildende Kristall auf einer Temperatur nahe der Schmelztemperatur gehalten wird, indem das aus der Schmelze herausgezogenen und erstarrte Kristallmaterial gegenüber Wärmestrahlungs- und Leitungsverlusten zumindest teilweise abgeschirmt wird und/oder Wärmeverluste durch eine Zusatzheizung mindestens teilweise ausgeglichen werden.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß während des langsamen Herausziehens des Kristallkeims zwischen geschmolzenem Kristallmaterial und aus der Schmelze gezogenem Einkristall ein niedriger Temperaturgradient eingestellt wird.
3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß die Abschirmung und/oder die Zusatzheizung derart angeordnet wird, daß in Ziehrichtung des Kristalls ein im wesentlichen konstanter Temperaturgradient eingestellt wird.
4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß der Temperaturgradient in dem verfestigten Kristallmaterial während des Ziehens unter einem Maximalwert von 4 K/cm gehalten wird.
5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß nach dem Ziehen des Kristalls der maximale Temperaturgradient innerhalb des Kristalls auf einen Wert unter 3 K/cm eingestellt wird und der Kristall insgesamt gleichmäßig abgekühlt wird.
6. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß der Tiegel zumindest während des Schrittes des langsamen Herausziehens in einem vorzugsweise vertikal angeordneten Rohr aus elektrisch leitfähigem Material, das als Suszeptor dient, angeordnet wird, und das Rohr induktiv beheizt wird.
7. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß zumindest das langsame Herausziehen unter Vakuum, das heißt vorzugsweise unter einem Druck zwischen 10^{-2} bis 10^{-8} Hektopascal erfolgt.
8. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß zumindest das langsame Herausziehen in einer Züchtungsatmosphäre erfolgt, die aus Argon oder Stickstoff oder einem Gemisch aus Argon und Sauerstoff, wobei der Sauerstoffanteil vorzugsweise

zwischen 0 und 2 Vol.% beträgt, oder einem Gemisch aus Stickstoff und Sauerstoff, wobei der Sauerstoffanteil vorzugsweise zwischen 0 und 2 Vol.-% besteht, oder einem Gemisch aus Argon und Wasserstoff, wobei der Anteil des Wasserstoffs vorzugsweise zwischen 0 und 10 Vol.-% beträgt, besteht.

5

9. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß die Temperatur in der Umgebung des Tiegels gesteuert oder geregelt wird.

10

10. Verfahren nach Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, daß die Temperatur in der Umgebung des Tiegels durch geeignete Wahl der Induktordimension und/oder der Suszeptorgeometrie gesteuert wird.

15

11. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet, daß der Temperaturgradient entlang des gezüchteten Einkristalls zwischen geschmolzenem Kristallmaterial und Impfkristall gesteuert oder geregelt wird.

12. Verfahren nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, daß die Einstellung des Temperaturgradienten über die Induktordimension und/oder die Suszeptorgeometrie erfolgt.

20

13. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 12, dadurch gekennzeichnet, daß das Suszeptormaterial in Abhängigkeit von Tiegelmateriale und Züchtungsatmosphäre ausgewählt wird.

14. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 13, dadurch gekennzeichnet, daß ein nichtmetallischer Kristallkeim verwendet wird.

25

15. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 14, dadurch gekennzeichnet, daß ein Korundkristallkeim (Al_2O_3), vorzugsweise ein Saphirkristallkeim, verwendet wird.

30

16. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 15, dadurch gekennzeichnet, daß der Kristallkeim in etwa in Richtung der kristallographischen c-Achse, vorzugsweise mit einer Abweichung von weniger als $\pm 15^\circ$, in das Kristallmaterial eingetaucht und langsam herausgezogen wird.

35

17. Vorrichtung zum Züchten von Einkristallen mit einem Tiegel zur Aufnahme von geschmolzenem Kristallmaterial, einer Heizeinrichtung zur Aufheizung des Tiegels und/oder des Kristallmaterials und einer Vorrichtung zum Ziehen des Kristalls aus der Schmelze, beispielsweise mit Hilfe eines eingetauchten Kristallkeims, dadurch gekennzeichnet, daß eine den Kristall während des Ziehens umgebende Abschirmung und/oder Heizeinrichtung vorgese-

hen ist, die ein starkes Abkühlen des erstarrten Kristallmaterials gegenüber der Schmelze bzw. einen großen Temperaturgradienten innerhalb des erstarrten Kristallmaterials verhindern.

- 5 18. Vorrichtung nach Anspruch 17, dadurch gekennzeichnet, daß die Heizeinrichtung aus einem vorzugsweise vertikal angeordneten Rohr aus elektrisch leitfähigem Material (Suszeptor), in dessen Innerem der Tiegel angeordnet ist, und einem Induktor, der das Rohr induktiv beheizt, besteht.
- 10 19. Vorrichtung nach Anspruch 18, dadurch gekennzeichnet, daß das Rohr aus Graphit, Wolfram, Molybdän, Iridium, Rhenium, Tantal, Osmium oder aus einer Legierung der genannten Elemente besteht.
- 15 20. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 17 bis 19, dadurch gekennzeichnet, daß die Suszeptorlänge einstellbar ist.
21. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 17 bis 20, dadurch gekennzeichnet, daß die Position des Induktors einstellbar ist.
- 20 22. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 17 bis 21, dadurch gekennzeichnet, daß der Tiegel aus Iridium, Molybdän, Wolfram, Rhenium, Tantal, Osmium oder aus einer Legierung aus den genannten Elementen besteht.

ZUSAMMENFASSUNG

Verfahren und Vorrichtung zur Züchtung von Korund-Einkristallen

5 Zur Herstellung von Saphirkristallen - hauptsächlich für die Uhrglasindustrie - wurde bislang hauptsächlich das Verneuil-Verfahren angewendet. Hierbei wird Aluminiumoxidpulver durch eine Knallgasflamme gerieselte und zu Tröpfchen aufgeschmolzen, die auf einem unterhalb angebrachten Saphirkeim auftreffen und dort anwachsen. Mit diesem Verfahren werden Saphirkristalle bis ca. 40 mm Durchmesser gezüchtet, die allerdings in der Regel Kleinwinkelkorngrenzen und andere Kristallbau-
10 fehler aufweisen.

Es ist daher Aufgabe der vorliegenden Erfindung, ein Verfahren und eine Vorrichtung zur Verfügung zu stellen, mit dem bzw. mit der es möglich ist, in Richtung der c-Achse (0° -Richtung) orientierte Saphirkristalle kostengünstig in hoher Qualität, d. h. insbesondere äußerst defektarm herzustellen.
15 Aus solchen Kristallen können nämlich durch Rundschleifen und Aufsägen 0° -Wafer ohne großen Materialverlust hergestellt werden.

Die Aufgabe wird hinsichtlich des Verfahrens dadurch gelöst, daß bei dem eingangs beschriebenen Verfahren während des langsamen Herausziehens des Kristallkeims zwischen geschmolzenem Kristallmaterial und aus der Schmelze gezogenem Einkristall ein niedriger Temperaturgradient eingestellt wird
20

Hinsichtlich der Vorrichtung wird die eingangs beschriebene Aufgabe gelöst durch eine Vorrichtung zum Züchten von Einkristallen mit einem Tiegel zur Aufnahme von geschmolzenem Kristallmaterial, einer Heizeinrichtung zur Aufheizung des Tiegels und/oder des Kristallmaterials und einer Vorrichtung zum Ziehen des Kristalls aus der Schmelze, beispielsweise mit Hilfe eines eingetauchten Kristallkeims, dadurch gekennzeichnet, daß eine den Kristall während des Ziehens umgebende Abschirmung und/oder Heizeinrichtung vorgesehen ist, die ein starkes Abkühlen des erstarrten Kristallmaterials gegenüber der Schmelze bzw. einen großen Temperaturgradienten innerhalb des
25
30 erstarrten Kristallmaterials verhindern.